

**BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

10/505415

Rec'd PCT/PTO 26 JAN 2005



BEST AVAILABLE COPY

REÇU 08 AVR. 2003

OMPI PCT

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 102 12 680.1

**Anmeldetag:** 22. März 2002

**Anmelder/Inhaber:** Degussa AG, Düsseldorf/DE

**Bezeichnung:** Nanoskaliges Zinkoxid, Verfahren zu seiner Herstellung und Verwendung

**IPC:** C 01 G, A 61 K, C 08 K

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 30. Januar 2003  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
 Im Auftrag

**PRIORITY  
DOCUMENT**  
 SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
 COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

## Nanoskaliges Zinkoxid, Verfahren zu seiner Herstellung und Verwendung

Gegenstand der Erfindung ist nanoskaliges, pyrogen  
5 hergestelltes Zinkoxidpulver, ein Verfahren zu seiner  
Herstellung und seine Verwendung.

Es sind viele Arten von Zinkoxidpulvern beschrieben. Diese  
Pulver finden Verwendung in Farben, Lacken, in Harzen und  
Fasern. Ein wichtiges Segment stellt die Verwendung von  
10 Zinkoxidpulvern im kosmetischen Bereich, besonders als  
Bestandteil von Sonnenschutzformulierungen, dar.

Prinzipiell stehen zwei Möglichkeiten zur Synthese von  
Zinkoxidpulvern zur Verfügung, eine naßchemische Prozesse  
und Gasphasenprozesse. In der Regel dienen bei den  
15 naßchemischen Prozessen solche Zinkverbindungen als  
Ausgangsmaterial, die thermisch in Zinkoxid überführt  
werden können, wie zum Beispiel Zinkhydroxid, Zinkoxalat  
oder Zinkcarbonat. Nachteilig bei der naßchemischen Methode  
ist, daß die erzeugten Zinkoxidpartikel zu größeren  
20 Einheiten agglomerieren, die speziell in kosmetischen  
Anwendungen unerwünscht sind. Der Prozess, gewöhnlich als  
batch-Prozess ausgeführt, umfasst Filtrationen und  
Trocknung der Partikel, welcher relativ kostenintensiv ist.

Ferner sind Verunreinigungen durch Prozess und  
25 Ausgangsmaterialien nicht oder nur sehr schwierig aus dem  
fertigen Produkt zu entfernen.

Gasphasenprozesse oder pyrogene Prozesse ermöglichen einen  
kostengünstigeren Prozess. Hierzu zählen der französische  
und amerikanische Prozess, nachdem Zinkoxid großtechnisch  
30 hergestellt wird.

Bei beiden Prozessen erfolgt eine Oxidation von Zinkdampf. Nachteilig hierbei ist die Bildung großer Aggregate aus Primärpartikeln und eine niedrige BET-Oberfläche.

Der Stand der Technik beschreibt verschiedene

- 5 Möglichkeiten, der Gasphasensynthese mit dem Ziel eine höhere BET-Oberfläche, eine bessere Transparenz und einen höheren UV-Schutz zu erzielen. Letztendlich haben alle diese Versuche die Oxidation von Zinkdampf gemeinsam.

- 10 JP 56-120518 beschreibt die Oxidation von Zinkdampf mit Luft oder Sauerstoff unter der Bildung von nicht aggregierten, nadelförmigen Zinkoxidpartikeln, welche oft nur schwierig in Sonnenschutzformulierungen einzuarbeiten sind.

- 15 US 6,335,002 beschreibt die Oxidation von Zinkdampf mit Luft oder Sauerstoff. Durch Variation der Prozessparameter sollen Primärpartikel mit weitestgehend isotroper Form und niedrigem Aggregationsgrad gebildet werden, wobei nicht ausgeführt ist, wie der Aggregationsgrad definiert ist. Die Oxidation des Zinkdampfes erfolgt in einer Flamme aus H<sub>2</sub> oder Propan und Luft oder Sauerstoff, wobei ein Überschuß an Sauerstoff verwendet wird.

- 25 Insgesamt bietet der Stand der Technik unabhängig von der Herstellung zahlreiche Arten von Zinkoxid in Form von Nadel-, Kugel-, Tetraeder-, Stäbchen und Flockenformen wie zum Beispiel in US 5,441,226 ausgeführt wird.

Der Stand der Technik zeigt das rege Interesse an Zinkoxid, insbesondere in seiner Anwendung als UV-Schutz in Sonnenschutzformulierungen.

- 30 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es ein Zinkoxidpulver bereitzustellen, das eine hohe Transparenz bei gutem UV-Schutz aufweist. Es soll sich ferner gut in Dispersionen einarbeiten lassen. Desweiteren besteht die

Aufgabe ein Verfahren zur Herstellung von Zinkoxidpulver bereitzustellen.

Die Aufgabe wird gelöst durch ein nanoskaliges, pyrogen hergestelltes Zinkoxidpulver mit einer BET-Oberfläche von  
5 10 bis 200 m<sup>2</sup>/g, dadurch gekennzeichnet, dass es in Form von Aggregaten von anisotropen Primärpartikeln vorliegt und die Aggregate einen mittleren Durchmesser von 50 bis 300 nm aufweisen.

Unter den Primärpartikeln sind die kleinsten,  
10 offensichtlich nicht weiter zerlegbaren Partikel im hochauflösenden TEM-Bildern zu verstehen. Mehrere Primärpartikel können sich an ihren Kontaktstellen zu Aggregaten zusammenlagern. Diese Aggregate sind durch Dispergiervorrichtungen entweder nur schlecht oder gar  
15 nicht mehr aufzulösen. Mehrere Aggregate können sich lose zu Agglomeraten zusammenfügen, wobei dieser Vorgang durch geeignete Dispergierung wieder rückgängig gemacht werden kann.

Unter anisotrop ist zu verstehen, dass die Anordnung der  
20 Atome entlang der drei Raumachsen unterschiedlich ist. Als anisotrope Primärpartikel sind zum Beispiel solche zu verstehen, die nadelförmig, knollenförmig oder plättchenförmig sind. Unter isotrop wäre zum Beispiel ein kubische oder kugelförmige Anordnung zu verstehen.

25 Unter pyrogen ist die Bildung von Oxiden durch Flammenoxidation von Metallen oder Metalloiden beziehungsweise von ihren Verbindungen in der Gasphase in einer Flamme, erzeugt durch die Reaktion von einem Brenngas, bevorzugt Wasserstoff, und Sauerstoff, zu  
30 verstehen. Dabei werden zunächst hochdisperse, nicht poröse Primärpartikel gebildet, die im weiteren Reaktionsverlauf zu Aggregaten zusammenwachsen und diese sich weiter zu Agglomeraten zusammenlagern können.

In einer besonderen Ausführungsform können die Aggregate aus einem Gemisch aus knollenförmigen Primärpartikeln und nadelförmigen Primärpartikeln vorliegen, wobei das Verhältnis von knollenförmigen/nadelförmigen

5 Primärpartikeln zwischen 99:1 bis 1:99 liegen kann.

Die knollenförmigen Primärpartikel weisen bevorzugt einen mittleren Durchmesser von 10 bis 50 nm auf und die nadelförmigen Primärpartikel weisen bevorzugt eine Länge von 100 nm bis 2000 nm, eine Breite von 10 nm bis 100 nm

10 auf.

Die Aggregate des erfindungsgemäßen Pulvers können eine weitestgehend anisotrope Struktur, definiert über einen Formfaktor  $F(\text{circle})$  von kleiner als 0.5, aufweisen. Die Größe  $F(\text{Circle})$  beschreibt die Abweichung eines Aggregates

15 von einer idealen Kreisform.  $F(\text{Circle})$  ist gleich 1 für ein ideales kreisförmiges Objekt. Je kleiner der Wert, desto weiter ist die Struktur des Objektes von der idealen Kreisform entfernt. Die Definition des Parameters erfolgt gemäß ASTM 3849-89.

Das erfindungsgemäße Pulver kann an seiner Oberfläche eine Sauerstoffkonzentration als nicht desorbierbare

20 Feuchtigkeit in Form von Zn-OH und/oder Zn-OH<sub>2</sub>-Einheiten von wenigstens 40% aufweisen. Die Bestimmung erfolgt durch XPS-Analyse (XPS = Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie)

25 der Sauerstoffsignale bei 532 bis 533 eV und 534 bis 535 eV.

Das erfindungsgemäße Pulver kann bevorzugt eine Transmission von nicht mehr als 60% bei einer Wellenlänge von 310 nm und 360 nm aufweisen.

30 In einer besonderen Ausführungsform liegt die Schüttdichte des erfindungsgemäßen Pulvers bei 40 bis 120 g/l.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung des erfindungsgemäßen Pulvers, welches dadurch

gekennzeichnet ist, dass Zinkpulver in vier aufeinanderfolgenden Reaktionszonen, Verdampfungszone, Nucleirungszone, Oxidationszone und Quenchzone, in Zinkoxidpulver überführt wird,

- 5 ♦ wobei in der Verdampfungszone das dorthin mittels eines Inertgasstromes geführte Zinkpulver in einer Flamme aus Luft und/oder Sauerstoff und einem Brenngas, bevorzugt Wasserstoff, verdampft wird unter der Maßgabe dass die Reaktionsparameter so gewählt sind, dass keine Oxidation des Zinks eintritt,
- 10
- 15 ♦ und wobei in der Nucleirungszone, in die das heisse Reaktionsgemisch aus der Verdampfungszone, bestehend aus Zinkdampf, Wasserdampf als Reaktionsprodukt der Flammreaktion und gegebenenfalls überschüssigem Brenngas, gelangt auf Temperaturen unterhalb des Siedepunktes von Zink abkühlt oder mittels eines Inertgases abgekühlt wird,
- 20 ♦ und wobei in der Oxidationszone das Gemisch aus der Nucleirungszone mit Luft und/oder Sauerstoff oxidiert wird,
- 25 ♦ und wobei in der Quenchzone das Oxidationsgemisch durch Zugabe von Kühlgas (zum Beispiel Stickstoff, Luft, Argon, Kohlendioxid) auf Temperaturen von weniger als 400°C abgekühlt wird.
- 25 Das Verfahren kann so durchgeführt werden, dass in der Verdampfungszone ein Überschuss an Brenngas eingesetzt wird, ausgedrückt in  $\lambda$ -Werten von 0,5 bis 0,99, bevorzugt von 0,8 bis 0,95.

30 In einer besonderen Ausführungsform kann Verfahren so durchgeführt werden, dass die Temperatur in der Verdampfungszone bevorzugt zwischen 920 °C und 2000°C liegt. In der Nucleirungszone kann die Temperatur bevorzugt

zwischen 500°C und 900°C, besonders bevorzugt zwischen 700°C und 800°C, liegen.

Weiterhin kann die Abkühlrate

- 5 ♦ in der Nucleirungszone bevorzugt zwischen 100 Kelvin/Sekunde und 10000 Kelvin/Sekunde, besonders bevorzugt zwischen 2000 Kelvin/Sekunde und 3000 Kelvin/Sekunde betragen und
- 10 ♦ in der Quenchzone kann die Abkühlrate bevorzugt zwischen 1000 Kelvin/Sekunde und 50000 Kelvin/Sekunde, besonders bevorzugt zwischen 5000 Kelvin/Sekunde und 15000 Kelvin/Sekunde, betragen.

Die Verweilzeit des Reaktionsgemisches in der

- 15 ♦ Verdampfungszone kann bevorzugt zwischen 0,1 Sekunden und 4 Sekunden, bevorzugt zwischen 0,5 Sekunden und 2 Sekunden,
  - 20 ♦ in der Nucleirungszone zwischen 0,05 Sekunden und 1,00 Sekunden, bevorzugt zwischen 0,1 Sekunden und 0,2 Sekunden,
  - ♦ in der Oxidationszone zwischen 5 Millisekunden und 200 Millisekunden, bevorzugt zwischen 10 Millisekunden und 30 Millisekunden,
  - ♦ und in der Quenchzone zwischen 0,05 Sekunden und 1,00 Sekunden, bevorzugt zwischen 0,1 Sekunden und 0,2 Sekunden, liegen.
- 25 Das Verfahren kann auch so durchgeführt werden, dass Luft und/oder Sauerstoff und das Brenngas an einer oder mehreren Stellen innerhalb der Verdampfungszone zugeführt werden können.

Die Abtrennung des Zinkoxidpulvers vom Gasstrom kann mittels Filter, Zyklon, Wäscher oder anderen geeigneten Abscheidern erfolgen.

5 Das erfindungsgemäße Pulver kann als Sonnenschutzmittel, als Vulkanisationshilfsmittel, Farbstoff in Tinten, in Kunstharzen, in pharmazeutischen und kosmetischen Zubereitungen, als keramischer Grundstoff, als Katalysator eingesetzt werden.

10 Das neue, erfindungsgemäße Zinkoxidpulver erhält seine Eigenschaften, wie zum Beispiel definierte Aggregatgröße und niedrige Transmissionswerte im UV-Bereich, die wichtig sind zum Beispiel für Verwendungen in Sonnenschutzformulierungen, durch das neue Herstellverfahren. Gegenüber dem Stand der Technik, der bei  
15 pyrogenen Verfahren stets von der Oxidation von Zinkdampf ausgeht, wird beim erfindungsgemäßen Verfahren der Zinkdampf vor der Oxidation unter den Siedepunkt des Zinkes abgekühlt. Dadurch kommt es zu einer Nucleierung, einer Bildung von Zinkkristalliten. Der Mechanismus dieser  
20 Bildung und die Struktur der Kristallite ist nicht geklärt. Durch Variation der Prozessparameter, wie zum Beispiel Abkühlraten, Verweilzeiten und/oder Temperaturen kann die Morphologie des Zinkpulvers variiert werden.



## Beispiele

### Analysenverfahren

Die BET-Oberfläche wird bestimmt nach DIN 66131.

Die TEM-Aufnahmen wurden mit einem Hitachi TEM-Gerät, Typ  
5 H-75000-2 erhalten. Mittels CCD-Kamera des TEM-Gerätes und  
anschliessender Bildanalyse wurden ca. 500 bis 600  
Aggregate ausgewertet.

Die Größe  $F(\text{Shape})$  ist gleich dem Quotienten aus minimalem  
zu maximalem Aggregatdurchmesser. Die Größe  $F(\text{Circle})$   
10 errechnet sich zu  $F(\text{Circle}) = 4\pi \times \text{mittlere Fläche} / 2 (P)$ ,  
mit  $P$  = Umfang der Aggregate.

Die Größen  $F(\text{Shape})$  und  $F(\text{Circle})$  beschreiben die  
Abweichung eines Partikels von einer idealen Kreisform.  
 $F(\text{Shape})$  und  $F(\text{Circle})$  sind 1 für ein ideales kreisförmiges  
15 Objekt. Je kleiner der Wert, desto weiter ist die Struktur  
des Objektes von der idealen Kreisform entfernt.

Die Definition der Parameter erfolgt nach ASTM3849-89.

Die Oberflächeneigenschaften wird durch großflächige ( $1 \text{ cm}^2$ )  
XPS-Analyse (XPS = Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie),  
20 sowohl im Originalzustand, wie auch nach 30 minütiger  
Oberflächenerosion durch Ionenbeschuss (5 keV Argonionen)  
ermittelt. Feinstrukturen der Sauerstoffsignale werden  
durch Gauß/Lorentz-Kurvenzerlegungen für Sauerstoff  
ermittelt.

25 Für die Transmissionsmessungen werden einprozentige  
wässrige Lösungen verwendet. Die Dispergierung erfolgt  
mittels eines Ultraschallgerätes der Fa. Bandelin  
Elektronik. Die Beschallungsdauer beträgt eine Minute. Die  
Messungen werden mittels eines Perkin Elmer UV/Vis-  
30 Spectrometer Lambda2 durchgeführt.

Die Schüttdichte wurde bestimmt nach DIN-ISO 787/XI.

**Beispiele**

Figur 1 zeigt ein Fließschema des erfindungsgemäßen Verfahrens mit den Verfahrensstufen und den ein- und ausgehenden Stoffströmen.

5

**Beispiel 1:**

Zinkpulver (250 g/h, Partikelgröße  $\leq 5 \mu\text{m}$ ) wird mittels eines Stickstoffstromes ( $1,5 \text{ m}^3/\text{h}$ ) in eine Verdampfungszone überführt, wo eine Wasserstoff-/Luftflamme (Wasserstoff:  $4,25 \text{ m}^3/\text{h}$ , Luft:  $8,40 \text{ m}^3/\text{h}$ ,  $\lambda = 0,82$ ) brennt. Dabei wird das Zinkpulver verdampft. Das Reaktionsgemisch aus Zink-Dampf, Wasserstoff, Stickstoff und Wasser wird anschließend durch Zudosieren von  $1 \text{ m}^3/\text{h}$  Stickstoff auf eine Temperatur von  $850^\circ\text{C}$  abgekühlt. Anschliessend werden  $5 \text{ m}^3/\text{h}$  Oxidationsluft und  $34 \text{ m}^3/\text{h}$  Quenchluft zugegeben, wobei die Reaktionstemperatur auf Werte von weniger als  $400^\circ\text{C}$  zurückgeht. Das erhaltene Zinkoxidpulver wird durch Filtration vom Gasstrom abgetrennt.

**Beispiel 2**

Wie Beispiel 1, wobei die Parameter gemäß der Werte in Tabelle 1 geändert werden.

**Beispiel 3 (Vergleichsbeispiel)**

Wie Beispiel 1, jedoch mit einem Überschuss an Luft gegenüber Sauerstoff in der Verdampfungszone. Die Parameter werden gemäß den Werten in Tabelle 1 geändert.

**Beispiel 4 (Vergleichsbeispiel)**

Wie Beispiel 1, jedoch ohne Nucleirungszone, die Temperatur vor der Oxidation sinkt nicht unter den Siedepunkt von Zink. Die Parameter werden gemäß den Werten in Tabelle 1  
5 geändert.

Die Charakterisierung der aus diesen Beispielen erhaltenen Produkte ist in Tabelle 2 angegeben.

Die Auswertung der Bildanalyse ergibt die deutlichsten  
10 Unterschiede der erfindungsgemäßen Zinkoxidpulver gegenüber dem Stand der Technik für die mittlere Fläche der Partikel, die Aggregatgrößen sowie dem Formfaktor  $F(\text{Circle})$ .

Von den erfindungsgemäßen Zinkoxidpulvern aus den Beispielen 1 und 2 wurden XPS-Analysen durchgeführt. Es  
15 wurde gefunden, dass der Anteil an Feuchtigkeit als nicht desorbierbarer Sauerstoff in Form von  $\text{Zn-OH-}$  und  $\text{Zn-OH}_2$ -Einheiten 55,5 % (Beispiel 1) und 48,3 % (Beispiel 2) beträgt. Die Feuchtigkeit ist damit zum Beispiel  
signifikant höher beim Produkt Nanotek Zinc Oxide der Fa.  
20 Nanophase Technologies.

Figur 2 zeigt eine TEM-Aufnahme des erfindungsgemäßen Pulvers. Es sind deutlich Aggregate aus knollen- und nadelförmigen Aggregaten zu erkennen.

Tabelle 1: Prozessparameter

		Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3 <sup>(1)</sup>	Beispiel 4 <sup>(1)</sup>
Verdampfung	Zink	250	300	300	250
	Stickstoff	1,5	1,5	1,0	2
	Wasserstoff	4,3	4,6	5	4,5
	Luft	8,4	9,0	22	20,5
	Lambda	0,82	0,84	1,8	1,9
Nucleirung	Kühlgas	1	1,5	1	0,5
	Temperatur	850	870	1050	960
Oxidation	Oxidationsluft	5,0	4,0	4	-
Quenchen	Quenchgas	34,0	30,0	10	-
	Temperatur	285	296	424	526

(1) Vergleichsbeispiel

Tabelle 2: Produkteigenschaften

		Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3 <sup>(1)</sup>	Beispiel 4 <sup>(1)</sup>
BET-Oberfläche	m <sup>2</sup> /g	36	20	7,5	16
mittlere Fläche	nm <sup>2</sup>	5306	15762	61070	3220219
mittlerer Aggregatdurchmesser	nm	75	133	186	515
mittlere Primärpartikelgröße	nm	17	24	43	79
Formfaktor F (Shape)		0,61	0,61	0,59	0,62
Formfaktor F (Circle)		0,37	0,32	0,43	0,65
Schüttdichte	g/l	80	62	90	100
Transmission	%	50	56	60	66
Morphologie		überwiegend knollenförmige Aggregate	Aggregate bestehend aus Nadeln und Knollen	nicht aggregierte Nadeln und Tetraeder	überwiegend Nadeln, nicht aggregiert

(1) Vergleichsbeispiel

**Patentansprüche**

1. Nanoskaliges, pyrogen hergestelltes Zinkoxidpulver mit einer BET-Oberfläche von 10 bis 200 m<sup>2</sup>/g, dadurch gekennzeichnet dass es in Form von Aggregaten von anisotropen Primärpartikeln vorliegt und die Aggregate einen mittleren Durchmesser von 50 bis 300 nm aufweisen.
2. Pulver nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Aggregate aus einem Gemisch aus knollenförmigen Primärpartikeln und nadelförmigen Primärpartikeln vorliegen, wobei das Verhältnis von knollenförmigen/nadelförmigen Primärpartikeln zwischen 99:1 bis 1:99 liegt.
3. Pulver nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die knollenförmigen Primärpartikel einen mittleren Durchmesser von 10 bis 50 nm und die nadelförmigen Primärpartikel eine Länge von 100 nm bis 2000 nm und eine Breite von 10 nm bis 100 nm aufweisen.
4. Pulver nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass die Aggregate eine weitestgehend anisotrope Struktur, definiert über einen Formfaktor  $F(\text{circle})$  von kleiner als 0,5, aufweisen.
5. Pulver nach Anspruch 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Sauerstoffkonzentration an der Oberfläche des Pulvers als nicht desorbierbare Feuchtigkeit in Form von Zn-OH und/oder Zn-OH<sub>2</sub>-Einheiten, bestimmt durch XPS-Analyse der Sauerstoffsignale bei 532 bis 533 eV und 534 bis 535 eV, wenigstens 40% beträgt.
6. Pulver nach Anspruch 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, dass die Transmission bei einer Wellenlänge von 310 nm und 360 nm nicht mehr als 60 %.

7. Pulver nach den Ansprüchen 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die Schüttdichte zwischen 40 und 120 g/l liegt.

5 8. Verfahren zur Herstellung des Pulvers nach den Ansprüchen 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass Zinkpulver in vier aufeinanderfolgenden Reaktionszonen, Verdampfungszone, Nucleirungszone, Oxidationszone und Quenchzone, in Zinkoxidpulver überführt wird,

10 wobei in der Verdampfungszone das dorthin mittels eines Inertgasstromes geführte Zinkpulver in einer Flamme aus Luft und/oder Sauerstoff und einem Brenngas, bevorzugt Wasserstoff, verdampft wird unter der Maßgabe dass die Reaktionsparameter so gewählt sind, dass keine Oxidation des Zinks eintritt,

15 und wobei in der Nucleirungszone, in die das heiße Reaktionsgemisch aus der Verdampfungszone, bestehend aus Zinkdampf, Wasserdampf als Reaktionsprodukt der Flammreaktion und gegebenenfalls überschüssigem Brenngas, gelangt auf Temperaturen unterhalb des  
20 Siedepunktes von Zink abkühlt oder mittels eines Inertgases abgekühlt wird,

und wobei in der Oxidationszone das Gemisch aus der Nucleirungszone mit Luft und/oder Sauerstoff oxidiert wird,

25 und wobei in der Quenchzone das Oxidationsgemisch durch Zugabe von Kühlgas auf Temperaturen von weniger als 400°C abgekühlt wird.

30 9. Verfahren nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass in der Verdampfungszone ein Überschuss an Brenngas eingesetzt wird, ausgedrückt in  $\lambda$ -Werten von 0,5 bis 0,99, bevorzugt von 0,8 bis 0,95.

10. Verfahren nach den Ansprüchen 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Temperatur in der Verdampfungszone zwischen 920 °C und 2000°C und in der Nucleirungszone zwischen 500°C und 900°C, besonders bevorzugt zwischen 700°C und 800°C, liegt.

11. Verfahren nach den Ansprüchen 8 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass die Abkühlrate in der Nucleirungszone zwischen 100 Kelvin/Sekunde und 10000 Kelvin/Sekunde, besonders bevorzugt zwischen 2000 Kelvin/Sekunde und 3000 Kelvin/Sekunde, und in der Quenchzone zwischen 1000 Kelvin/Sekunde und 50000 Kelvin/Sekunde, besonders bevorzugt zwischen 5000 Kelvin/Sekunde und 15000 Kelvin/Sekunde, liegt.

12. Verfahren nach den Ansprüchen 8 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass die Verweilzeit in der Verdampfungszone zwischen 0,1 Sekunden und 4 Sekunden, besonders bevorzugt zwischen 0,5 Sekunden und 2 Sekunden, in der Nucleirungszone zwischen 0,05 Sekunden und 1,00 Sekunden, besonders bevorzugt zwischen 0,1 Sekunden und 0,2 Sekunden, in der Oxidationszone zwischen 5 Millisekunden und 200 Millisekunden, besonders bevorzugt zwischen 10 Millisekunden und 30 Millisekunden, und in der Quenchzone zwischen 0,05 Sekunden und 1,00 Sekunden, besonders bevorzugt zwischen 0,1 Sekunden und 0,2 Sekunden, liegt.

13. Verfahren nach den Ansprüchen 8 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass Luft und/oder Sauerstoff und das Brenngas an einer oder mehreren Stellen innerhalb der Verdampfungszone zugeführt werden können.

14. Verfahren nach den Ansprüchen 8 bis 13, dadurch gekennzeichnet, dass eine Abtrennung des Zinkoxidpulvers vom Gasstrom mittels Filter, Zyklon, Wäscher oder anderen geeigneten Abscheidern erfolgt.

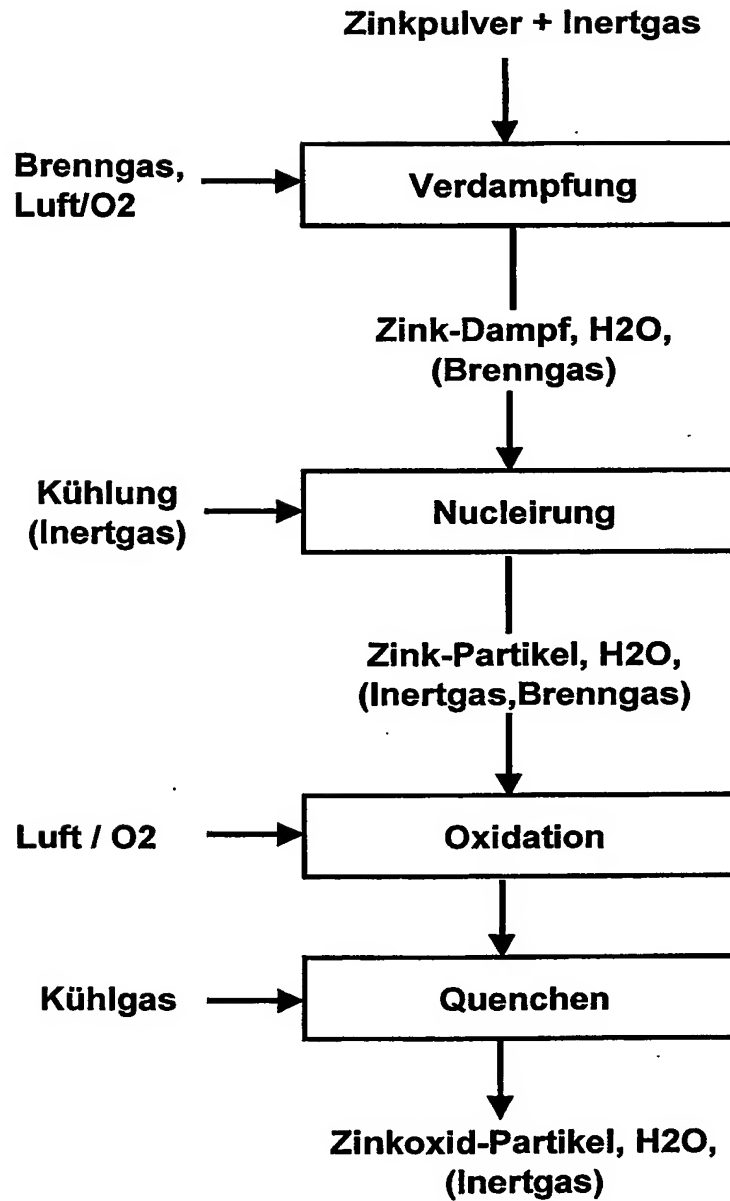


15. Verwendung des Pulvers nach den Ansprüchen 1 bis 7 als  
Sonnenschutzmittel, als Vulkanisationshilfsmittel,  
Farbstoff in Tinten, in Kunstharzen, in  
pharmazeutischen und kosmetischen Zubereitungen, als  
5 keramischer Grundstoff, als Katalysator.

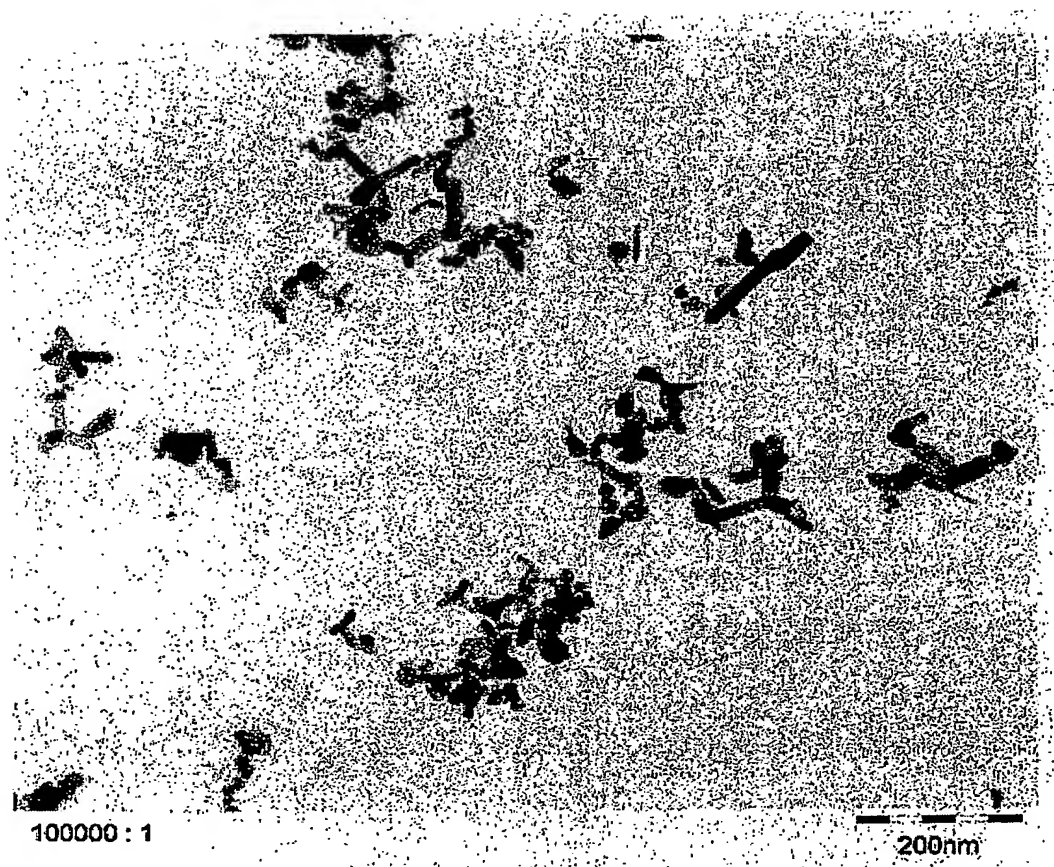
### **Zusammenfassung**

#### **Nanoskaliges Zinkoxid, Verfahren zu seiner Herstellung und Verwendung**

- 5 Nanoskaliges, pyrogen hergestelltes Zinkoxid mit einer BET-Oberfläche von 10 bis 200 m<sup>2</sup>/g, welches in Form von Aggregaten von anisotropen Primärpartikeln vorliegt und wobei die Aggregate einen mittleren Durchmesser von 50 bis 300 nm aufweisen. Es wird erhalten aus Zinkpulver, welches
- 10 in den vier aufeinanderfolgenden Reaktionszonen, Verdampfungszone, Nucleirungszone, Oxidationszone und Quenchzone, in Zinkoxidpulver überführt wird. Es kann in Sonnenschutzformulierungen verwendet werden.



Figur 1



Figur 2

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**